

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2002年11月27日
Date of Application:

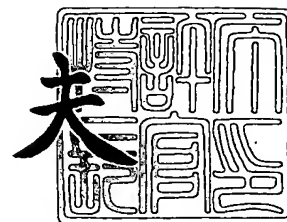
出願番号 特願2002-343785
Application Number:
[ST. 10/C]: [JP 2002-343785]

出願人 本田技研工業株式会社
Applicant(s):

2003年 9月17日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号 出証特2003-3076447

【書類名】 特許願

【整理番号】 H102240201

【提出日】 平成14年11月27日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 B32B 15/08
H01M 8/02
H01M 8/10

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号
株式会社本田技術研究所内

【氏名】 小此木 泰介

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号
株式会社本田技術研究所内

【氏名】 田中 広行

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号
株式会社本田技術研究所内

【氏名】 西山 忠志

【特許出願人】

【識別番号】 000005326

【氏名又は名称】 本田技研工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100064414

【弁理士】

【氏名又は名称】 磯野 道造

【電話番号】 03-5211-2488

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 015392

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9713945

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 シール付き燃料電池用セパレータおよびシール付き膜電極接合体

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 固体高分子電解質膜の両面を一对の電極で挟んだ膜電極接合体を挟持しながら積層されるシール付き燃料電池用セパレータであって、

少なくとも一方の端部の表裏にシールを有することを特徴とするシール付き燃料電池用セパレータ。

【請求項 2】 前記シールは、隣接するセパレータまたは膜電極接合体に形成されるシールと嵌合構造をとることを特徴とする請求項 1 に記載のシール付き燃料電池用セパレータ。

【請求項 3】 セパレータに挟持され、固体高分子電解質膜の両面を一对の電極で挟んで構成されるシール付き膜電極接合体において、

少なくとも一方の端部の表裏にシールを有することを特徴とするシール付き膜電極接合体。

【請求項 4】 前記シールは、隣接するセパレータに形成されるシールと嵌合構造をとることを特徴とする請求項 3 に記載のシール付き膜電極接合体。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、シール付き燃料電池用セパレータおよびシール付き膜電極接合体に関し、詳しくは、シール性に優れた構造を有するシール付き燃料電池用セパレータおよびシール付き膜電極接合体に関するものである。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

近年、電気自動車の動力源等として固体高分子型の燃料電池が注目されている。固体高分子型の燃料電池（P E F C）は、常温でも発電することが可能であり、様々な用途に実用化されつつある。

【0 0 0 3】

一般に燃料電池システムは、固体高分子電解質膜を挟んで一方側にカソード極を区画し、他方側にアノード極を区画して構成されており、カソード極に供給される空気中の酸素と、アノード極に供給される水素との電気化学反応によって発生した電力で外部負荷を駆動するシステムである。

【0004】

このような燃料電池システムには、図4（a）に示すような燃料電池スタック100が設けられている。燃料電池スタック100は、1つの膜を挟んで発電する1つの単セルを、たとえば、電極面が鉛直になるように水平方向に何段か繰り返し積層し、ボルト等で締め付けて一体化したものである。

単セルは、図4（b）に示すように高分子電解質膜M、電極触媒層C、C、ガス拡散層D、D、セパレータSA、SH等により構成される。なお、高分子電解質膜Mの一面側に電極触媒層Cとガス拡散層D、他面側に電極触媒層Cとガス拡散層Dを設けた構造体を膜電極接合体MEAということもある。また、図4（b）の符号RSは、ゴムシール材である。

【0005】

これらの構成部材のうちセパレータSA、SHは、単セルを複数枚重ねて所要の電圧を得る各セル間の繋ぎ（積層化機能）を持たせるために用いられるものであるが、その他、以下の機能も要求される。

- （1）燃料電池スタック100内で水素や空気をセルに供給する供給通路を確保する機能。
- （2）燃料電池スタック100を冷却するための冷却液の供給通路を確保する機能。
- （3）電流（電子）を集めて取り出す機能。

そのため、セパレータSA、SHの材料としては、導電性や耐食性が要求され、合成黒鉛や黒鉛と樹脂とを混合したカーボン系の材料、あるいは導電性や耐食性のある金属材料が多く用いられている。

【0006】

また、このようなセパレータSA、SHは、燃料電池スタックとして形成された際に、前記したように、積層された状態となるが（図4参照）、一構成単位で

ある単セルにおけるセパレータ S A とセパレータ S H との間では、水素や空気や水が系外に漏洩しないための気密性や液密性が要求される。

【0007】

したがって、セパレータ S A, S H は、これらの機能性を発揮すべく、図 5 (a), (b) に示すように、従来からセパレータ S A とセパレータ S H の間に、セパレータ S A, S H とは別個に成形されたゴム製のシール 100 (フッ素系、E P D M 等) を挟み込んでいた (パッキン材、クッション材としての機能)。

この方法では組付けの工数が掛かったり、組付け忘れや組付け不良等、コストや品質面に問題点があったが、セパレータ S A, S H とシールを一体にすることで解決することができる。ここで、セパレータ S A, S H にシール 100 を一体成形することが特許文献 1 に開示されている。これによれば、一方のセパレータに一体成形されたシールが、隣接する他方のセパレータに接触し、気密性・液密性を確保できる。

【0008】

【特許文献 1】 特開平 11-129396 号公報

【0009】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、従来構造では、シール 100 が他方のセパレータ S A (または、S H) に直接接触することから、接触面積が小さく、外部からの衝撃によってもズレ易いため、気密性・液密性が損なわれ易いという問題があった。

したがって、本発明は、シールの接触面が外部からの衝撃に対してもズレにくく、シール性に優れたシール付き燃料電池用セパレータおよびシール付き膜電極接合体を提供することを課題とする。

【0010】

【課題を解決するための手段】

本発明は、前記課題を解決すべく構成されるものであり、請求項 1 に記載の発明は、固体高分子電解質膜の両面を一对の電極で挟んだ膜電極接合体を挟持しながら積層されるシール付き燃料電池用セパレータであって、少なくとも一方の端部の表裏にシールを有することを特徴とする。

【0011】

請求項1に記載の発明によれば、燃料電池用セパレータの表裏にシールが形成されていることから、燃料電池用セパレータを積層させた場合、シール同士が接触して、接触面積が大きくなる。そのため、外部からの衝撃によって多少のズレが生じることによるシール性の低下を防止できる。

【0012】

請求項2に記載の発明は、請求項1に記載のシール付き燃料電池用セパレータにおいて、前記シールは、隣接するセパレータまたは膜電極接合体に形成されるシールと嵌合構造をとることを特徴とする。

【0013】

請求項2に記載の発明によれば、隣接するセパレータまたは膜電極接合体に形成されるシール同士が嵌合できるような形状で形成されているので、シールの接触面が、外部からの衝撃があってもズレにくくなり、シール性が向上する。また、シール同士が嵌合できるような形状で形成されているので、セパレータの組付け時の位置決めを容易にすることができる。

【0014】

請求項3に記載の発明は、セパレータに挟持され、固体高分子電解質膜の両面を一对の電極で挟んで構成されるシール付き膜電極接合体において、少なくとも一方の端部の表裏にシールを有することを特徴とする。

【0015】

請求項3に記載の発明によれば、膜電極接合体の表裏にシールが形成されていることから、隣接するセパレータにシールが接触して、気密性・液密性を確保することができる。

【0016】

請求項4に記載の発明は、請求項3に記載のシール付き膜電極接合体において、前記シールは、隣接するセパレータに形成されるシールと嵌合構造をとることを特徴とする。

【0017】

請求項4に記載の発明によれば、膜電極接合体に形成されるシールが、隣接す

るセパレータに形成されるシールと嵌合できるような形状で形成されているので、シールの接触面が外部からの衝撃があってもズレにくくなり、シール性が向上する。また、シール同士が嵌合できるような形状で形成されているので、セパレータと膜電極接合体の組付け時の位置決めを容易にすることができる。

【0018】

【発明の実施の形態】

〔第1の実施の形態〕

以下、本発明の第1の実施の形態を、適宜図面を参照しながら詳細に説明する。

参照する図面において、図1は、積層された単セルの断面図である。

【0019】

単セル1は、高分子電解質膜M、電極触媒層C、C、ガス拡散層D、D、を挟むように、燃料電池用セパレータ10、10を配置して構成される。

燃料電池用セパレータ10は、板状のセパレータ11と、セパレータ11の両端部の表裏に配置される一対のシール12A、12B（または／および12A'、12B'）とを一体成形して形成されるものである。この実施形態ではシール12A、12Bおよびシール12A'、12B'を一体に形成しているものとして説明する。

【0020】

セパレータ11は、単セル1を積層化して形成される燃料電池スタックにおいて、単セル1を複数枚重ね合わせて所要の電圧を得る各セル間の繋ぎ（積層化機能）を持たせるために用いられるものである。

【0021】

なお、セパレータ11の材料には、たとえば、鋼板、ステンレス鋼板、アルミニウム板、メッキ処理鋼板や防食用の表面処理をした金属薄板、または、合成黒鉛や黒鉛と樹脂とを混合したカーボン系の材料が好適に用いられるが、特に限定されるものではない。また、セパレータ11の厚みは特に限定されるものではないが、本実施形態では0.05～0.3mm程度を想定する。

【0022】

シール 12A はセパレータ 11 の一方の面における両端部において一部凸状に形成され、シール 12B はセパレータ 11 の他方の面において、隣接するセパレータ 11 に形成されるシール 12A と嵌合するように凹状に形成される。なお、端部の形状は対称であるため、一方の端部は図示を省略する。

また、連通孔 13 を挟んでシール 12A, 12B よりも電極 C, C 側に形成されるシール 12A', 12B' は、セパレータ 11 の両方の面において凸状に形成され、水素と酸素が混合しないようにしている。

【0023】

シール 12A, 12B, 12A', 12B' は、ゴム組成物から形成される。

本発明に用いられる組成物とは、加硫することによりシール材を組成するための組成物であり、一般に、ゴム成分、加硫化剤、加硫促進剤から主として構成され、所望に応じて従来公知の各種添加剤を添加できる。

本発明において用いられるゴム成分とは、限定されるものではないが、たとえば、ニトリルゴム、シリコーンゴム、フッ素ゴム、アクリルゴム、スチレンブタジエンゴム、エチレンプロピレンゴム、四フッ化エチレン樹脂、アクリロニトリルブタジエンゴム、イソprene ゴム、ブタジエンゴム、ブチルゴム、クロロピレンゴム、エチレンプロピレンジエン (EPDM) ゴム、ウレタンゴム、クロロスルホン化ポリエチレンゴム、塩素化ポリエチレンゴム、エピクロルヒドリンゴムの各種合成ゴムおよび天然ゴム (NBR)、またはこれらのブレンドが挙げられる。

これらのゴム成分は、形成されるシールの性質に応じて適宜選択することができる。

【0024】

本発明の組成物における加硫剤および加硫促進剤およびその添加量は、当該技術分野に公知の化合物から適宜選択される。例えば、加硫剤としては、硫黄、パーオキサイド、ポリアミン、チウラムージサルファイド等が挙げられ、加硫促進剤としては、グアニジン類、チオウレア類、チアゾール類、ジチオカルバミン酸塩類等が挙げられる。

さらに、その他の成分として、着色剤、たとえば、酸化チタン、弁柄、群青、

カーボンブラック等を添加してもよい。

このような成分から構成される組成物は、一般には加温することにより、粘性のある流体となる。

【0025】

前記したセパレータ 11 とシール 12 A, 12 B, 12 A', 12 B' (以下、「シール 12」という。)を一体成形して、燃料電池用セパレータ 10 とする製造方法について、以下、説明する。

図 2 は、燃料電池用セパレータの製造工程について説明する図であって、(a) は、ゴム組成物を仮成形して仮成形シールとする図、(b) は、仮成形シール間にセパレータをインサートする図、(c) は、シールおよびセパレータを保持して仮成形シールを本加硫する図、(d) は、成形品の図である。

なお、ここで、「仮成形シール」とは、本発明に係る方法により加硫して所望の性能を有するシール材を意味する。また、「仮成形」とは、ゴム組成物からなるシールを所定の形状を保持できる状態であり、なおかつ、さらに硬化可能な状態で硬化(半硬化)させることができる状態をいう。

また、図 2 (a) ~ (d) ではセパレータの両端部を図示するため、セパレータの中央部分は省略して示している。

【0026】

まず、第 1 の工程として、ゴム組成物 12 a を仮成形する(仮成形工程。図 2 (a) 参照)。なお、ゴム組成物 12 a は、仮シール 12 b となり、最終的にはシール 12 A, 12 A', 12 B, 12 B' となるものとする。

仮成形工程は、ゴム組成物 12 a を所定の形状を有する仮成形シール 12 b に成形することを目的とする工程であり、完全に加硫化させて最終シール 12 を形成するものではない。

仮成形シール 12 b は、セパレータ 11 の表裏に形成するものであるため、表面に形成されるものと裏面に形成されるものを別個に成形するようにする。

選択されたゴム組成物 12 a における成分に応じて、ゴム組成物 12 a が所定の形状となる程度の条件で、従来公知のゴム成分の成形法、たとえば、トランスファ成形により、ゴム組成物 12 a を仮成形シール 12 b に成形する。

たとえば、ゴム組成物 12a において、選択されたゴム成分がエチレンプロピレンゴム (EPDM) であり、これをトランスファ成形により成形する場合、60～170℃程度の温度で2分間程度成形を行う。このようにして、ゴム組成物 12a は所定のゴム形状を有する仮成形シール 12b となる。

【0027】

第2の工程として、仮成形シール 12b にセパレータ 11 をインサートする (狭持工程。図2 (b) 参照)。

狭持工程では、仮成形工程において成形された表面用 (または裏面用) 仮成形シール 12b 上にセパレータ 11 を載置して、裏面用 (または表面用) 仮成形シール 12b を上から覆うようにセットする。

なお、次工程において、セパレータ上に形成するシールの位置ズレを防止する目的で、インサートする際に、仮成形シール 12b またはセパレータ 11、あるいは両者に従来公知の接着剤を塗布してもよい。

【0028】

第3の工程として、仮成形シール 12b を本加硫して所望の弾性を有するシール 12 に形成する (本加硫工程。図2 (c) 参照)。

本加硫工程では、加硫型内で仮成形シール 12b およびセパレータ 11 を保持しながら仮成形シール 12b の本加硫を行う。

たとえば、ゴム成分が、前記同様のエチレンプロピレンゴム (EPDM) であり、これをトランスファ成形により成形する場合、セパレータ 11 がインサートされた仮成形シール 12b を加圧化 (たとえば、7.8～14.7MPa)、150～180℃程度の温度で加硫が終わるまで加硫する。このように本加硫することによって、所望の性質を有するシール 12 をセパレータの表裏に形成することができる。

【0029】

第4の工程として、本加硫工程で得られた成形品たる燃料電池用セパレータ 10 (図2 (d) 参照) をさらに二次加硫してもよい (二次加硫工程)。

二次加硫工程は、必ずしも必要な工程ではなく、所望に応じて適宜行うことができる。

二次加硫工程を行う場合、前記した本加硫工程では所望の性質を有するシール 1 2 となるまで加硫を行わず、セパレータ 1 1 の表裏にシールが形成される程度（仮成形シール 1 2 b とシール 1 2 の間くらい）に加硫を行う。次いで、二次加硫工程において、所望とする最終形状を有するシール 1 2 をセパレータ 1 1 の表裏に形成する（たとえば、オーブン中、1 5 0 ～ 1 8 0 ℃程度の温度で加硫が終わるまで加硫を行う。）。

【 0 0 3 0 】

以上によれば、第 1 の実施の形態において、次のような効果が得られる。

隣接するセパレータ 1 1 に形成されるシール 1 2 同士は対となる部分が嵌合できるような形状で形成されているので、外部からの衝撃があってもズレにくくなり、シール性が向上する。

また、嵌合構造を有することでシール 1 2 同士の接触面積も確保され、シールのズレを原因とするシール性の低下（シール同士の面圧低下等）を抑制できる。

さらに、シール 1 2 同士が嵌合できるような形状で形成されているので、組付け時の位置決めを容易にすることができる。

【 0 0 3 1 】

さらに、第 1 の実施の形態による製造方法によれば、仮成形されて必要な形状を持った仮成形シール 1 2 b の間にセパレータ 1 1 をインサートして、セパレータ 1 1 とシール 1 2 を一体化成形することができるので、セパレータ 1 1 を大幅に変形させることなしにゴム組成物 1 2 a からシール 1 2 を効率良く、かつ、精度良く製造することが可能となる。

なお、二次加硫工程を含むことにより、仮成形工程における時間を短縮でき、時間的に加硫型を有効活用でき、大量生産しやすくなる点で利点がある。

また、二次加硫工程を含むことにより、加硫を完全に行うことができ、不純物を揮発させることができる。

【 0 0 3 2 】

従来技術では成形が困難であったゴム組成物 1 2 a を複雑な形状に成形することも可能であるため、シール 1 2 を、クッション材、シール材としての機能を果たせるような最適な形状に成形することも可能である。

【0033】

以上、本発明の第1の実施の形態を説明したが、本発明はこれらの実施の形態に限定されるものではなく、種々の変更が可能である。たとえば、第1の実施の形態では、セパレータ11の両端部においてシール12を形成する構成としたが、本発明はこれに限定されるものではなく、一方の端部においてのみ形成するようにしてもよい。

また、第1の実施の形態においては、仮成形工程等を設けつつシール12とセパレータ11を一体成形しているが、本発明はこれに限定されるものではない。たとえば、予め嵌合するように成形された一对のシールをセパレータの表裏に接着処理を行うものでもよいし、もしくは、インジェクション法・コンプレッション法・トランスファ法などを用いて嵌合できるような形状のシールをセパレータの表裏に一体成形してもよい。また、セパレータの表裏のいずれか一面においてはシールを一体成形し、他方の面においてはそれに嵌合できるような形状のシールを接着処理するものであってもよい。

【0034】

また、たとえば、本発明を電子製品の部品等、一般のシール付き金属板の製造にも適用することができる。なお、シールまたはセパレータの形状、厚み、高さ等は適宜変更可能であることはいうまでもない。

【0035】

〔第2の実施の形態〕

次に、本発明の第2の実施の形態について図面を参照しながら説明する。なお、第2の実施の形態は、第1の実施の形態を一部変形したものであるので、同一の構成要素については同一の符号を付して、説明を省略する。

参照する図面において、図3は、第2の実施の形態における単セルの断面図である。

【0036】

単セル1は、高分子電解質膜Mの両側に、電極触媒層C、C、ガス拡散層D、Dを備えて構成される膜電極接合体MEAを挟むように、燃料電池用セパレータ10、10を配置して構成される。

燃料電池用セパレータ 1 0 は、板状のセパレータ 1 1 と、セパレータ 1 1 の両端部の表裏に配置される一対のシール 1 2 A, 1 2 B と、高分子電解質膜 M と対向する位置に配置されるシール 1 2 C, 1 2 D (または、1 2 G, 1 2 H) とを一体成形して形成されるものである。

【0 0 3 7】

電極触媒層 C, C およびガス拡散層 D, D から露出する高分子電解質膜 M の端部の表裏に、シール 1 2 E, 1 2 F が一体成形されている。

シール 1 2 E は、隣接するセパレータ 1 1 に形成されるシール 1 2 D と嵌合する形状を有しており、シール 1 2 F も同様にして、隣接するセパレータ 1 1 に形成されるシール 1 2 G に嵌合する形状を有している。

前記した第 1 の実施の形態と同様の方法で、高分子電解質膜 M にシールを一体成形することができる。

【0 0 3 8】

以上によれば、第 2 の実施の形態において、次のような効果が得られる。

すなわち、膜電極接合体 M E A の高分子電解質膜 M に形成されるシール 1 2 E, 1 2 F が、隣接するセパレータ 1 1 に形成されるシール 1 2 D, 1 2 G と嵌合できるような形状で形成されているので、シール同士の接触面が外部からの衝撃があってもズレにくくなり、シール性が向上する。また、シール同士が嵌合できるような形状で形成されているので、セパレータ 1 1 と膜電極接合体 M E A の組付け時の位置決めを容易にすることができる。

【0 0 3 9】

【発明の効果】

請求項 1 に記載の発明によれば、燃料電池用セパレータに形成されるシール同士が接触して、接触面積が大きくなる。そのため、外部からの衝撃によって多少のズレが生じることによるシール性の低下を防止できる。

【0 0 4 0】

請求項 2 に記載の発明によれば、シールの接触面が、外部からの衝撃があってもズレにくくなり、シール性が向上する。また、シール同士が嵌合できるような形状で形成されているので、セパレータの組付け時の位置決めを容易にすること

ができる。

【0 0 4 1】

請求項 3 に記載の発明によれば、膜電極接合体の表裏にシールが形成されていることから、隣接するセパレータにシールが接触して、気密性・液密性を確保することができる。

【0 0 4 2】

請求項 4 に記載の発明によれば、膜電極接合体に形成されるシールが、隣接するセパレータに形成されるシールと嵌合できるような形状で形成されているので、シールの接触面が外部からの衝撃があってもズレにくくなり、シール性が向上する。また、シール同士が嵌合できるような形状で形成されているので、セパレータと膜電極接合体の組付け時の位置決めを容易にすることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

第 1 の実施の形態における積層された単セルの断面図である。

【図 2】

シール付き燃料電池用セパレータの製造工程について説明する図であって、（a）は、ゴム組成物を仮成形して仮成形シールとする図、（b）は、仮成形シール間にセパレータをインサートする図、（c）は、シールおよびセパレータを保持して仮成形シールを本加硫する図、（d）は、成形品の図である。

【図 3】

第 2 の実施の形態における単セルの断面図である。

【図 4】

（a）は、従来の燃料電池スタックの外観を示す斜視図であり、（b）は、（a）の単セルの構成を拡大した図である。

【図 5】

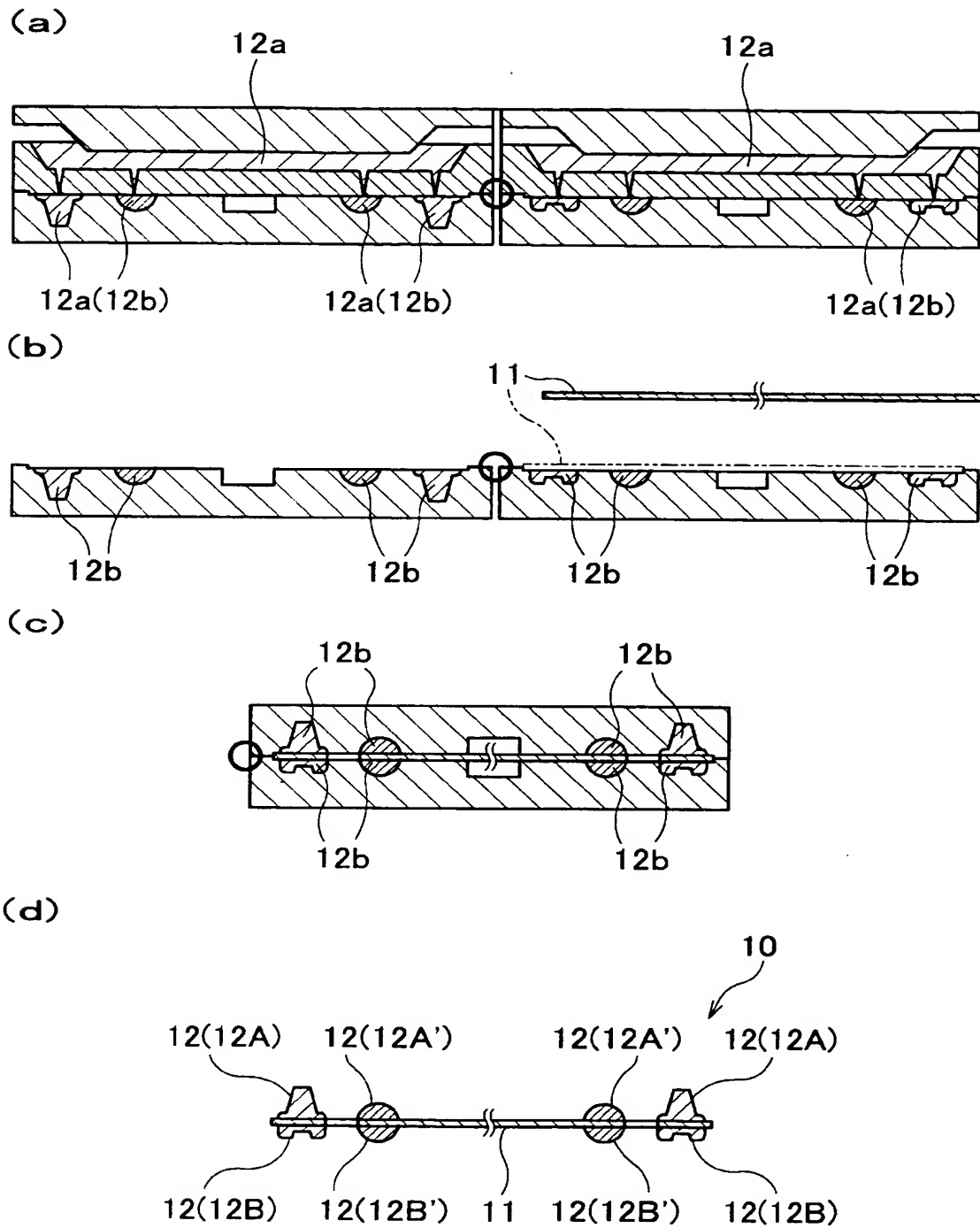
（a）は、積層された従来の単セルの断面図である。

【符号の説明】

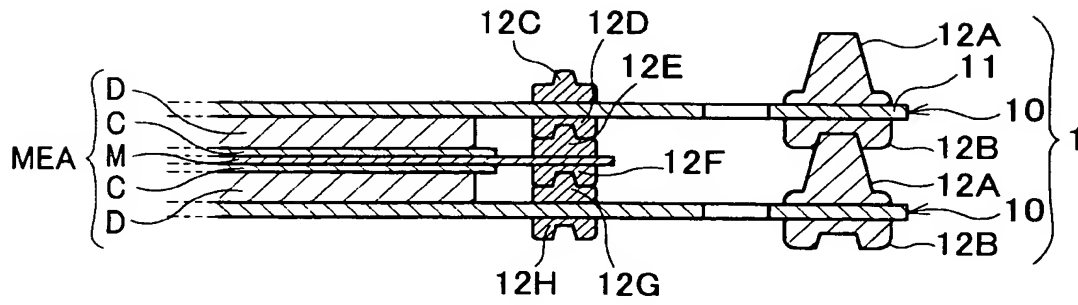
- 1 単セル
- 1 0 燃料電池用セパレータ

1 1	セパレータ	
1 2, 1 2 A, 1 2 A', 1 2 B, 1 2 B'		シール
1 2 C, 1 2 D, 1 2 E, 1 2 F, 1 2 G, 1 2 H		シール
1 2 a	ゴム組成物	
1 2 b	仮成形シール	
ME A	膜電極接合体	
M	高分子電解質膜	

【図 2】



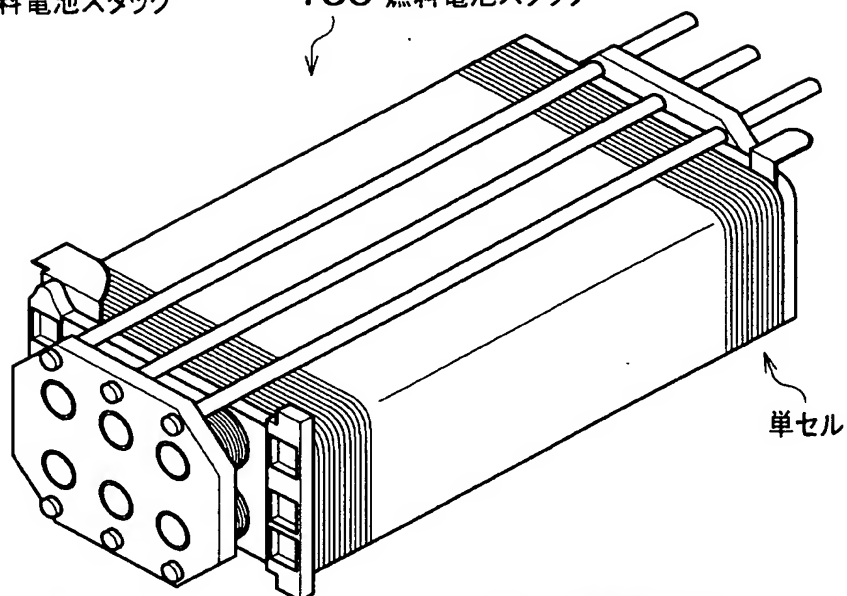
【図 3】



【図 4】

(a) 燃料電池スタック

100 燃料電池スタック

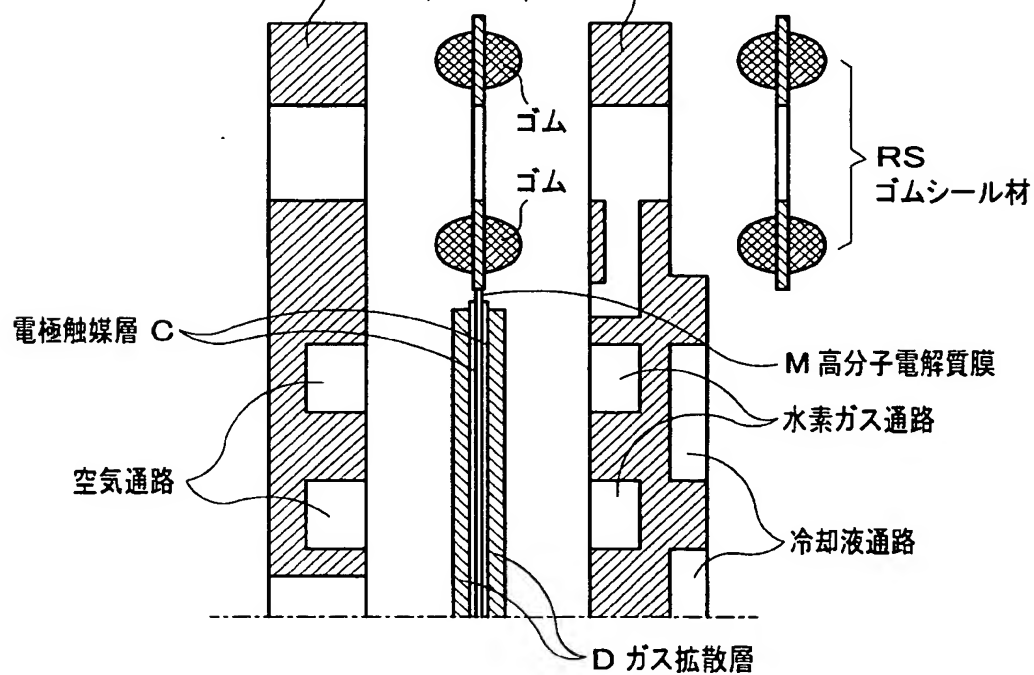


(b) 単セル構成拡大図

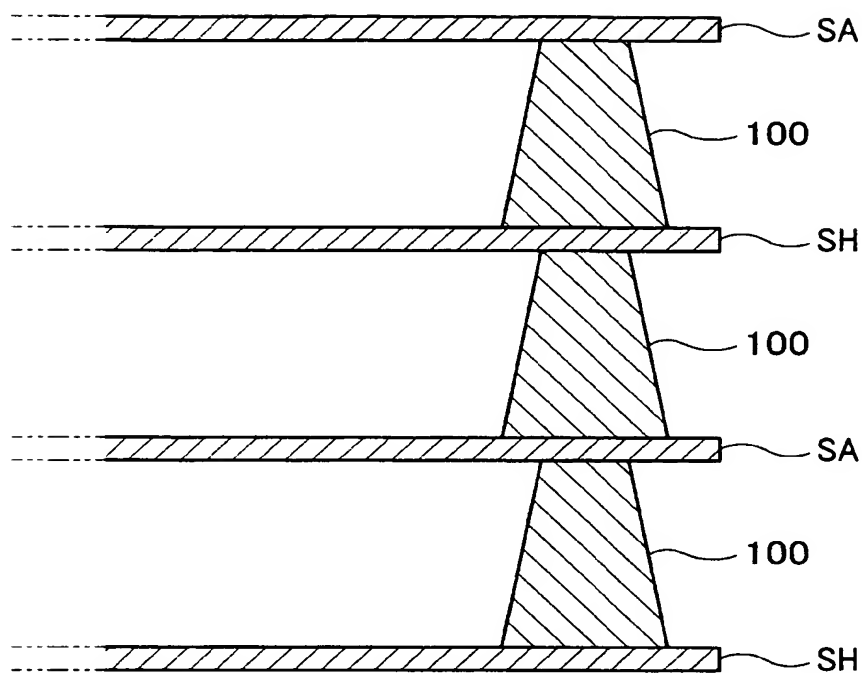
空気側セパレータ SA

MEA 膜電極接合体

SH 水素側セパレータ



【図 5】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 シールの接触面が外部からの衝撃に対してもズレにくく、シール性に優れたシール付き燃料電池用セパレータを提供することを課題とする。

【解決手段】 固体高分子電解質膜Mの両面を一对の電極で挟んだ膜電極接合体M E Aを挟持しながら積層されるシール付き燃料電池用セパレータ10であって、少なくとも一方の端部の表裏にシール12A, 12Bを有するように構成する。これによれば、燃料電池用セパレータ10を積層させた場合、シール同士が接触して、接触面積が大きくなる。そのため、外部からの衝撃によって多少のズレが生じることによるシール性の低下を防止できる。

【選択図】 図1

特願 2 0 0 2 - 3 4 3 7 8 5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 5 3 2 6]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 9 月 6 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区南青山二丁目 1 番 1 号

氏 名

本田技研工業株式会社